TENT COOPERATION TRE/ **

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

LIOIII (IIE IIA	ILMMIN	OHLAO

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24

Arlington, VA 22202 ETATS-UNIS D'AMERIQUE

Date of mailing (day/month/year) 18 April 2001 (18.04.01)	in its capacity as elected Office	In its capacity as elected Office	
International application No.	Applicant's or agent's file reference		
PCT/JP00/04749	CN00056		
International filing date (day/month/year)	Priority date (day/month/year)		
14 July 2000 (14.07.00)	04 August 1999 (04.08.99)		
Applicant			
NODERA, Akio			

1.	The designated Office is hereby notified of its election made:
	X in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
	02 March 2001 (02.03.01)
!	in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:
2.	The election X was
	was not
	made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO	Authorized officer
34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	R. Forax
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38

P^TENT COOPERATION TREATY

	From the INTERNATIONAL BUREAU	
PCT	To:	
NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE (PCT Rule 92bis.1 and Administrative Instructions, Section 422) Date of mailing (day/month/year) 22 juin 2001 (22.06.01) Applicant's or agent's file reference CN00056	KATAOKA, Makoto c/o Idemitsu Kosan Co., Ltd. Intellectual Property Center 24-4, Anesakikaigan Ichihara-shi, Chiba 299-0107 JAPON IMPORTANT NOTIFICATION	
International application No.	International filing date (day/month/year)	
PCT/JP00/04749	14 juillet 2000 (14.07.00)	
The following indications appeared on record concerning: the applicant the inventor	X the agent the common representative	
Name and Address	State of Nationality State of Residence	
TOHEI, Masamichi Idemitsu Kosan Co., Ltd.	Telephone No.	
24-4, Anesakikaigan Ichihara-shi, Chiba 299-0107	0436-61-9113	
Japan	Facsimile No. 0436-61-9099	
	Teleprinter No.	
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that t	he following change has been recorded concerning:	
X the person the name the add	dress the nationality the residence	
Name and Address	State of Nationality State of Residence	
KATAOKA, Makoto c/o Idemitsu Kosan Co., Ltd.	Telephone No.	
Intellectual Property Center 24-4, Anesakikaigan	0436-61-9113	
Ichihara-shi, Chiba 299-0107 Japan	Facsimile No.	
dapan	0436-61-9099	
	Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary:		
3. Future observations, in necessary.		
4. A copy of this notification has been sent to:		
X the receiving Office	the designated Offices concerned	
the International Searching Authority	X the elected Offices concerned	
X the International Preliminary Examining Authority	other:	
The Industrial Dec (1992)	Authorized officer	
The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes	Shinji IGARASHI	
1211 Geneva 20, Switzerland		
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38	



From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION CONCERNING SUBMISSION OR TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

TOHEI, Masamichi Idemitsu Kosan Co., Ltd. 24-4, Anesakikaigan Ichihara-shi, Chiba 299-0107 JAPON



IMPORTANT NOTIFICATION
International filing date (day/month/year)
14 July 2000 (14.07.00)
Priority date (day/month/year)
04 August 1999 (04.08.99)

- 1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- 2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- 3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- 4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>

Priority application No.

Country or regional Office
or PCT receiving Office
of priority document

04 Augu 1999 (04.08.99) 11/220919 JP 04 Sept 2000 (04.09.00)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

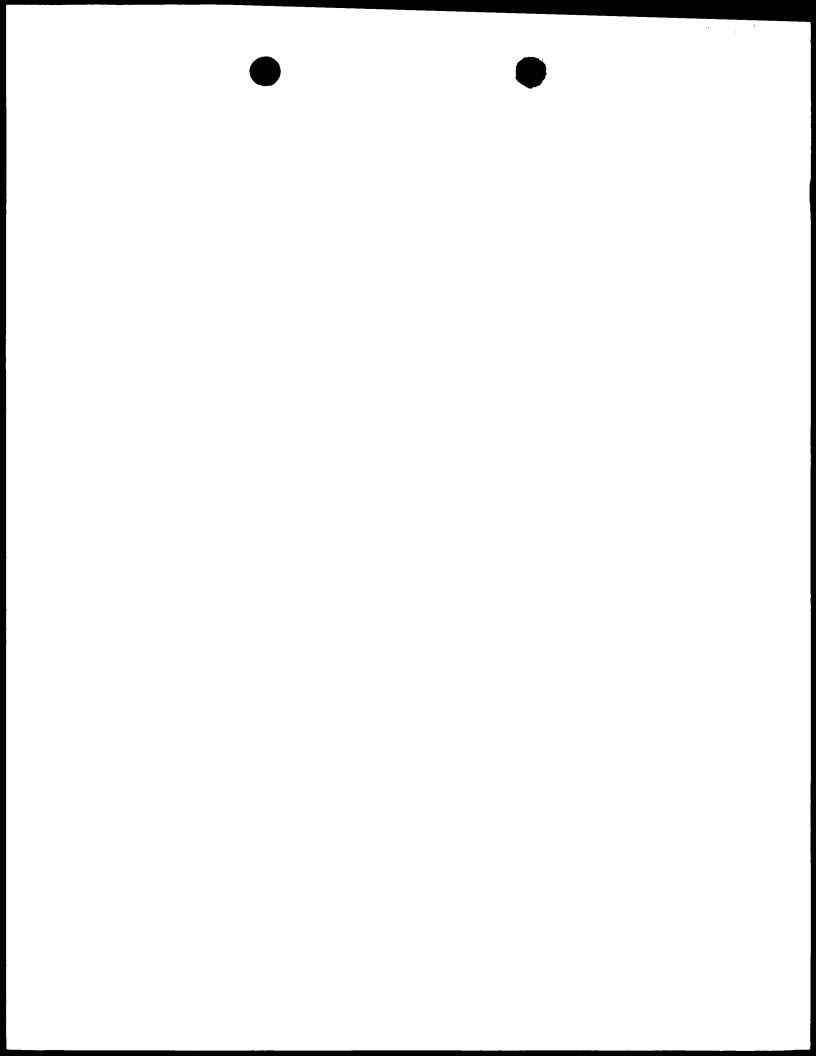
Authorized officer

Magda BOUACHA

3 1

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Telephone No. (41-22) 338.83.38





From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

TOHEL Masa

TOHEI, Masamichi Idemitsu Kosan Co., Ltd. 24-4, Anesakikaigan Ichihara-shi, Chiba 299-0107 JAPON

Applicant's or agent's file reference
15 February 2001 (15.02.01)
Date of mailing (day/month/year)

IMPORTANT NOTICE

International application No. PCT/JP00/04749

CN00056

International filing date (day/month/year)

Priority date (day/month/year) 04 August 1999 (04.08.99)

14 July 2000 (14.07.00)

Applicant

IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD. et al

 Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

ΕP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 15 February 2001 (15.02.01) under No. WO 01/10956

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

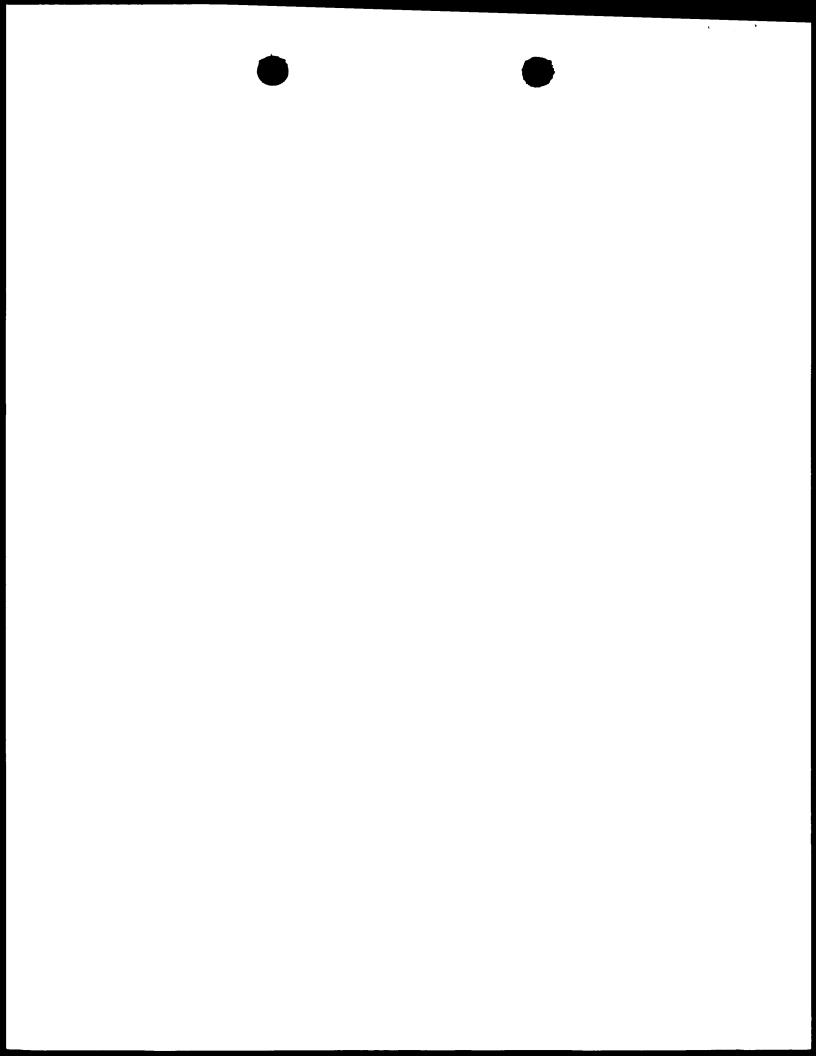
The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

J. Zahra

Telephone No. (41-22) 338.83.38

Facsimile No. (41-22) 740.14.35



特 許 協 力 条 彩

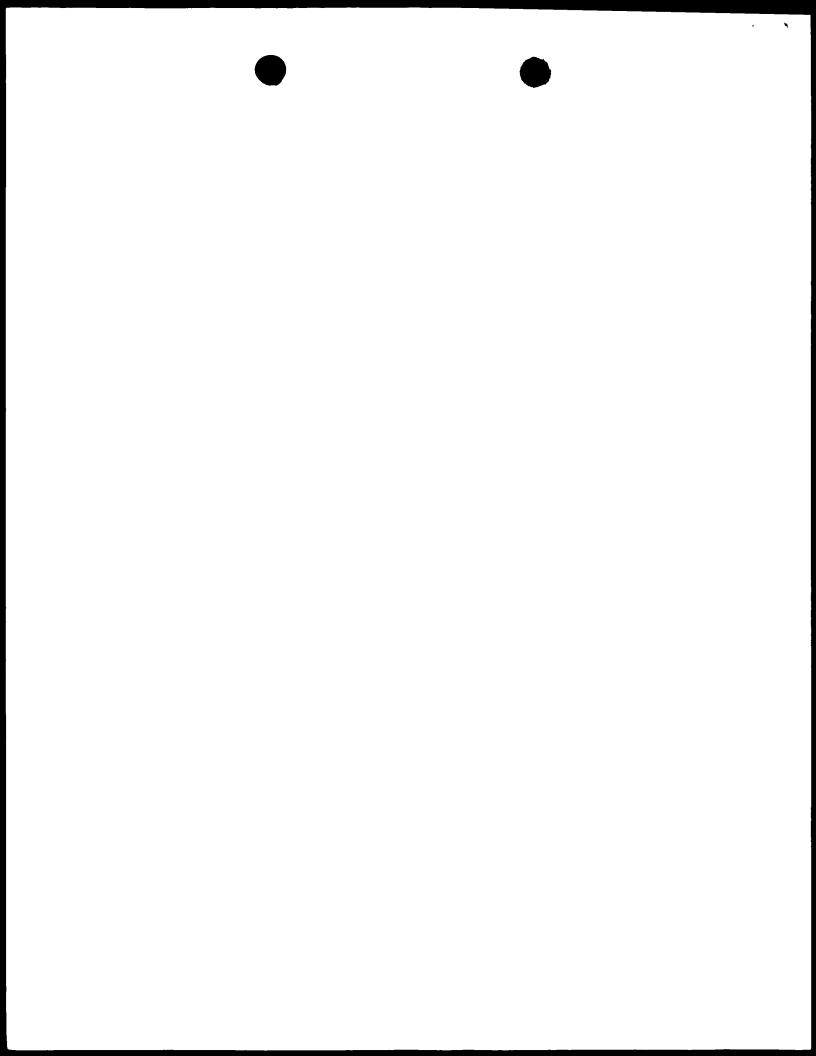


PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 CN00056	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。			
国際出願番号 PCT/JP00/04749	国際出願日 (日.月.年) 14.07.00 優先日 (日.月.年) 04.08.99			
出願人 (氏名又は名称) 出光石油化学	株式会社			
国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。 この写しは国際事務局にも送付される。				
この国際調査報告は、全部で3_	ページである。			
この調査報告に引用された先行打	を術文献の写しも添付されている。 			
	ほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。 れた国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。			
b. この国際出願は、ヌクレオチ この国際出願に含まれる書	で又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。面による配列表			
□ この国際出願と共に提出さ	れたフレキシブルディスクによる配列表			
出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表				
□ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表				
□ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述 書の提出があった。				
■ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。				
2. 請求の範囲の一部の調査だ	⁵ できない(第1欄参照)。			
3. 発明の単一性が欠如してい	\る(第Ⅱ欄参照)。			
4. 発明の名称は 🗓 出願	重人が提出したものを承認する。			
□ 次≀	に示すように国際調査機関が作成した。			
5. 要約は 🗓 出	重人が提出したものを承認する。			
III	I欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により 際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこ 国際調査機関に意見を提出することができる。			
6. 要約書とともに公表される図は、 第 <u>1</u> 図とする。 出	直 人が示したとおりである。 □ なし			
区 出版	重人は図を示さなかった。			
一 本師	図は発明の特徴を一層よく表している。 			



	野の分類(国際特許分類(IPC))	発明の属する分野の分類	Α.
--	-------------------	-------------	----

Int. Cl⁷ C08L69/00, C08L67/02, C08K3/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl7 C08L67/00-C08L69/00, C08K3/00-13/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

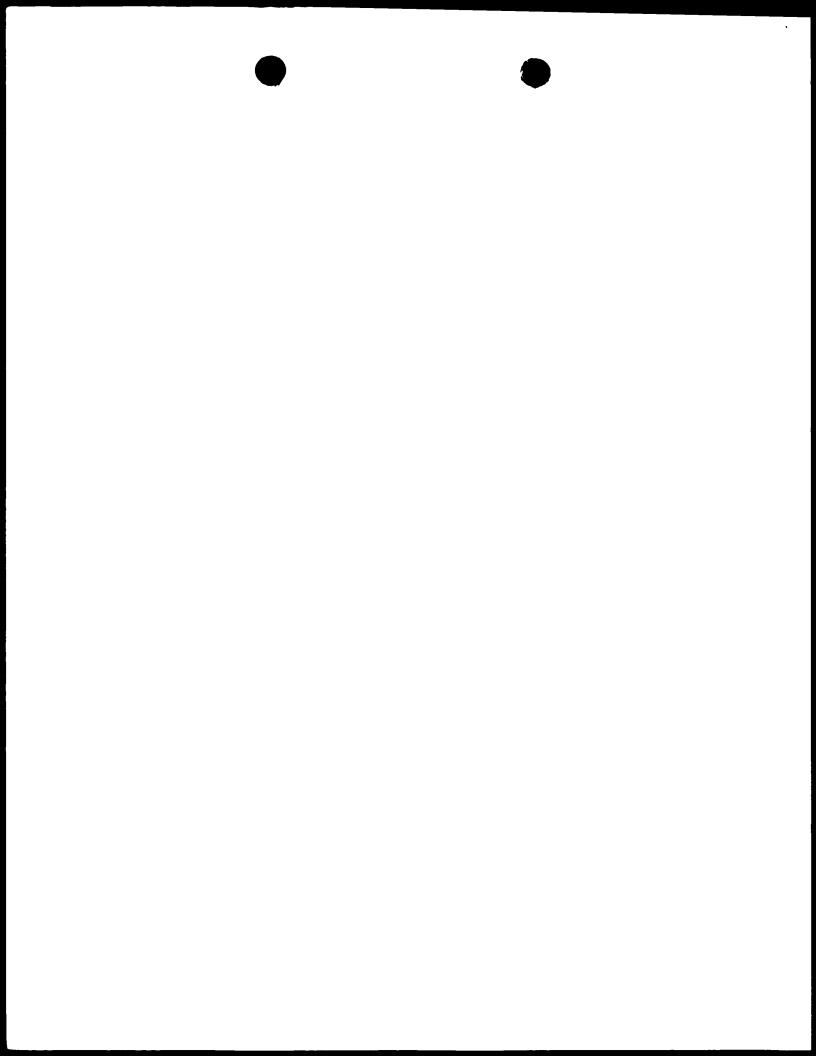
C. 関連する	5と認められる文献	
引用文献の		関連する
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号
Y 1	JP, 59-176345, A (三菱瓦斯化学株式会社) 5.10 月.1984 (05.10.84), 特許請求の範囲, 第1頁右下 欄第16行目, 第3頁左上欄第12行目, (ファミリーなし)	1 - 9
Y 2	EP, 902060, A2 (NEC CORPORATION) 17. 3月. 1999 (17. 03. 99), Claims, 第33欄 &JP, 10-139964, A	1 — 9
Y 2	EP, 692522, A2 (IDEMITSU PETROCHE	1 – 9

|x| C欄の続きにも文献が列挙されている。

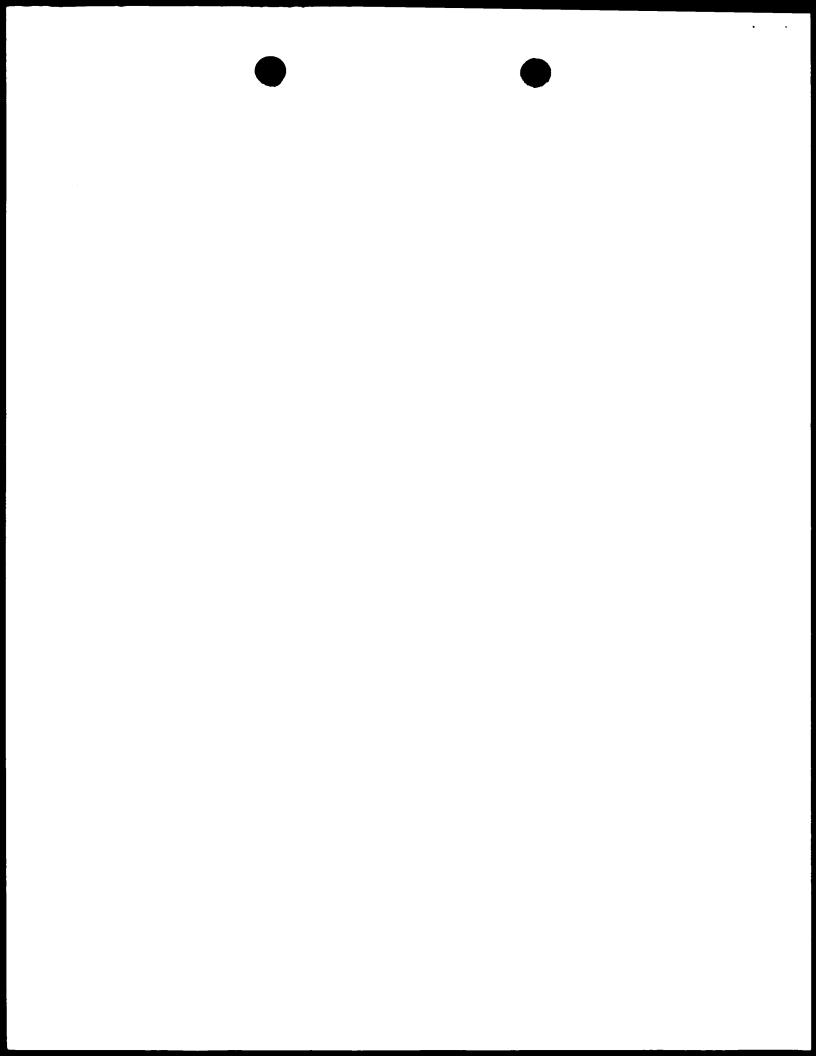
パテントファミリーに関する別紙を参照。

- * 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「〇」ロ頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献



	国際調査	国際出願番 PCT/JP0	0/04749
引用文献の	関連すると認められる文献		関連する
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するとを MICAL CO., LTD.) 17. 1.96), Claims, 第2頁第1&JP,8-81620,A &US	1月. 1996(17. 0 2行目, 第2頁第22行目	請求の範囲の番号
Y 2	JP, 11-199767, A(帝人化1999(27.07.99), 特許請ァミリーなし)		2-9
Y 2	JP, 11-181268, A(鰐淵化月. 1999(06.07.99), 特第40欄, (ファミリーなし)		2 - 9
Y 2	JP, 8-239565, A (出光石油月、1996 (17.09.96), 特第42欄, (ファミリーなし)		2-9



特 許 協 力 条 約



PCT

REC'D 27 AUG 2001

WIPO

電話番号 03-3581-1101 内線

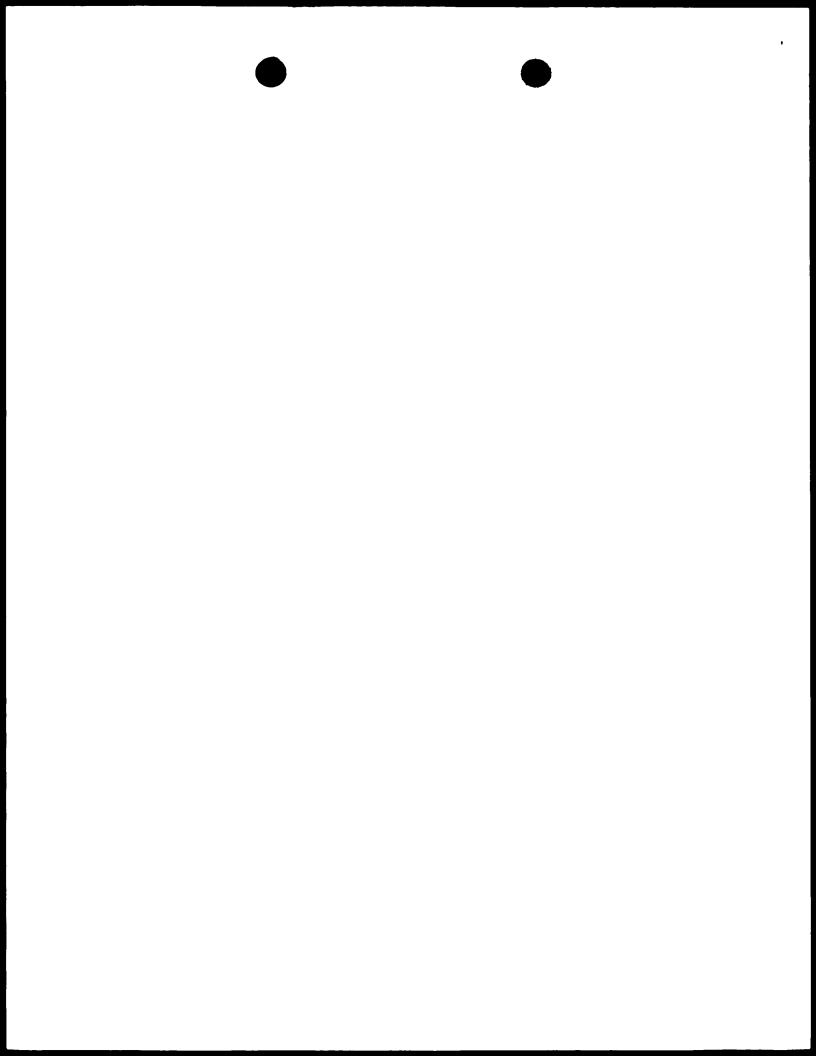
3 4 5 7

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条) [PCT36条及びPCT規則70]

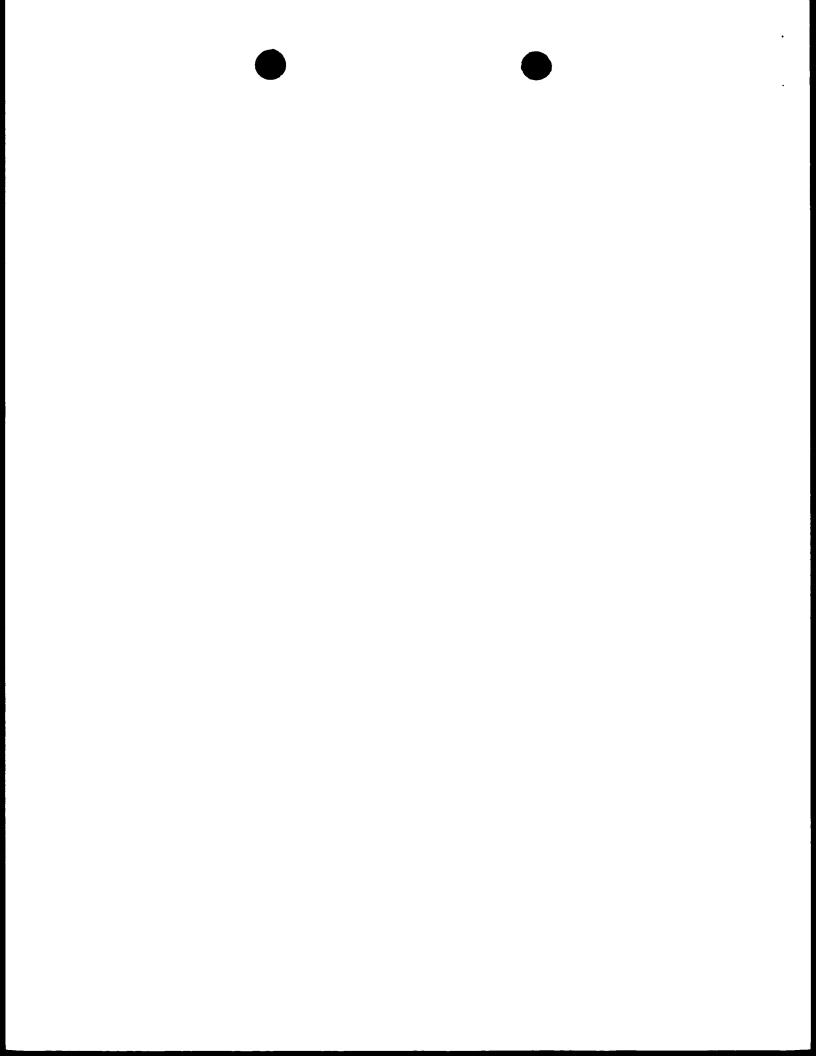
出願人又は代理人 の書類記号 CN00056	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。				
国際出願番号 PCT/JP00/04749	国際出願日 (日.月.年) 14.07.00 優 先日 (日.月.年) 04.08.99				
国際特許分類(IPC) Int.Cl ⁻ C	08L69/00, C08L67/02, C08K3/00				
出願人(氏名又は名称) 出光石油化学株式	C会社				
2. この国際予備審査報告は、この表紙 この国際予備審査報告には、N 査機関に対してした訂正を含む (PCT規則70.16及びPCT この附属書類は、全部で 3. この国際予備審査報告は、次の内名 I X 国際予備審査報告の基礎 II 優先権 II	ページである。 				
── VII 国際出願に対する意見					
国際予備審査の請求書を受理した日 02.03.01	国際予備審査報告を作成した!! 08.08.01				
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番	特許庁審査官 (権限のある職員) 天野 宏樹 3号				





国際出願番号 PCT/JP00/04749

Ι.	[国際予備審查報	と告の基礎				
1.	ŗ		提出され			• • • • • • • • • • • • • • • • • • • •	T14条)の規定に基づく命令に本報告書には添付しない。
	X	出願時の国際	奈出願書類				
		明細書 明細書 明細書	第 第 —— 第		ページ、 ページ、 ページ、	出願時に提出されたも 国際予備審査の請求書	
		請求の範囲	第		項、	出願時に提出されたも	_
	_	請求の範囲 請求の範囲	第		項、 項、	PCT19条の規定に 国際予備審査の請求書	基づき補正されたもの と共に提出されたもの
	\Box	請求の範囲	第		項、		_ 仁の書簡と共に 提出されたもの 。
		区面 区面 区面	第 第 第		ページ/図、 ページ/図、 ページ/図、	国際予備審査の請求書	
		明細書の配列 明細書の配列 明細書の配列	表の部分	第	ページ、 ページ、 ページ、	出願時に提出されたも 国際予備審査の請求書	
2.	Ŧ	に記の出願書類	(の言語は、	下記に示す場	—— 合を除くほか、この	の国際出願の言語である。	
	£	ご記の書類は、	下記の言語	語である	語である	3 .	
		PCT規則	IJ48. 3 (b) l	こいう国際公開		う翻訳文の言語 は55.3にいう翻訳文の言	活話
3 .	Š	の国際出願は	、ヌクレ	ナチド又はアミ	ノ酸配列を含んでは	おり、次の配列表に基づ	き国際予備審査報告を行った。
				れる書面による	ら配列表 シキシブルディスク	による配列表	
		=				出された書面による配列	 表
	L	_				出されたフレキシブルデ	「イスクによる配列表 ・超える事項を含まない旨の陳述
		_ 書の提出が	があった 5配列表に				起える野気を含まない自の保証 とした配列が同一である旨の陳述
4.	\neg	正により、下	記の書類が	-			
[請求の範囲	弗 第 <u></u> 図面の第		へーン 項 ~~->	> ∕ (1)	
5. [れるので、そ	の補正がさ	いれなかったも	 したように、補正が	3出願時における開示の領 (PCT規則70.2(c) :	範囲を越えてされたものと認めら この補正を含む差し替え用紙は上



有

V.	新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12 文献及び説明	条(РСТ3	5条(2))	に定める見解、	それを裏付ける
1.	見解					

 進歩性(IS)
 請求の範囲
 有

 請求の範囲
 1-9
 無

請求の範囲

請求の範囲

 産業上の利用可能性(IA)
 請求の範囲
 1-9
 有

 請求の範囲
 無

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

新規性(N)

文献 1: JP 59-176345 A (三菱瓦斯化学株式会社) 5.10月.1984 (05.10.84)

文献 2 : EP 902060 A2 (NEC CORPORATION) 17.3月.1999 (17.03.99)

文献 3 : EP 692522 A2 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) 17.1月.1996 (17.01.

96)

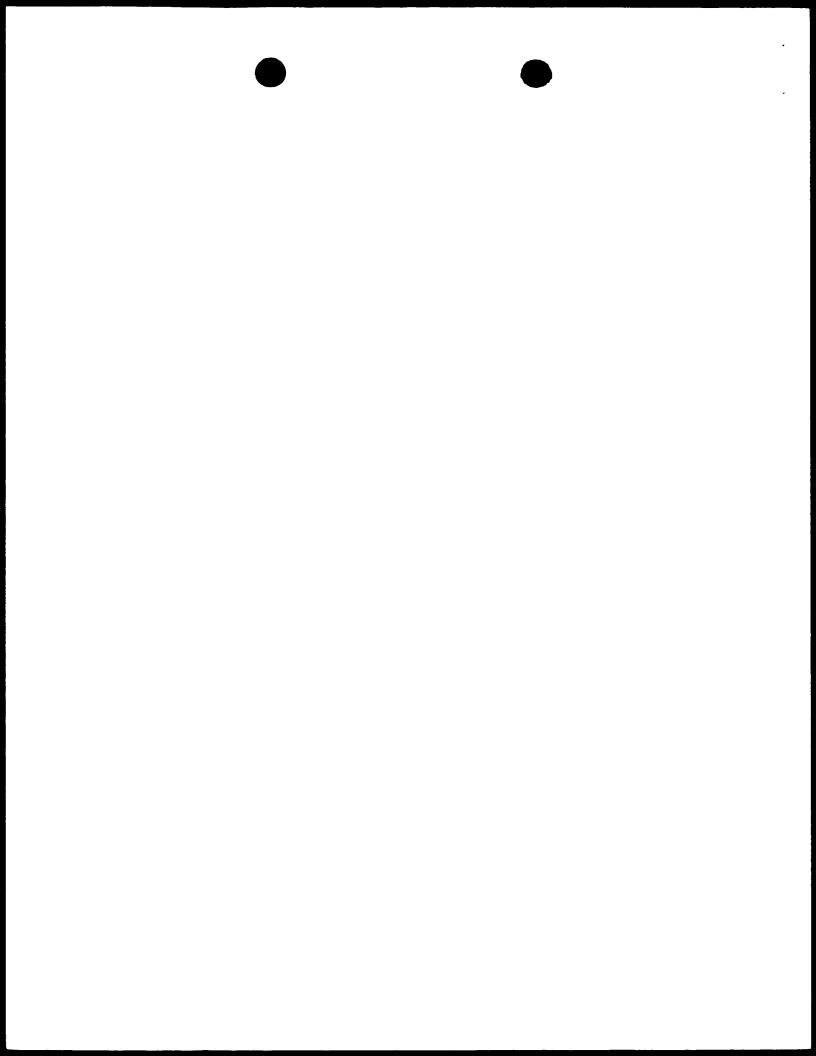
文献4: JP 11-199767 A (帝人化成株式会社) 27.7月.1999 (27.07.99) 文献5: JP 11-181268 A (鰐淵化学工業株式会社) 6.7月.1999 (06.07.99) 文献6: JP 8-239565 A (出光石油化学株式会社) 17.9月.1996 (17.09.96)

請求の範囲1-9に記載の発明は、文献1,2,4-6により進歩性を有しない。 文献1には、芳香族ポリカーボネートに特定の高分子量の芳香族ポリエステルを配合することによって、芳香族ポリカーボネート本来の特性が生かされ、且つ特に耐薬品性と耐蒸気性が改善され得る旨、記載されている。文献2には、芳香族ポリカーボネートにアルコキシ基を有するシリコーン樹脂、補強剤としてタルク粉、さらに必要に応じてドリップ防止剤を添加する組成物が記載されている。なお、ポリカーボネート系樹脂組成物に対して不可リル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンは非常に一般的なものである。そして、文献4-6に示すれるように、ポリカーボネート系樹脂組成物においてタルクを添加することにより難燃性や耐熱性が向上することは周知であり、タルクの粒径が外観に影響を及ぼすことも既に知られている。

よって、文献1,2,4-6に基づいて、請求の範囲1-9に記載の発明をなすことは、当業者にとって困難なことではなく、格別な効果も認められない。

請求の範囲1-9に記載の発明は、文献1,3-6により進歩性を有しない。 文献3には、ポリカーボネートーポリオルガノシロキサン共重合体、ポリカーボネート及びフィブリル形成能を有する平均分子量50000以上のポリテトラフルオロエチレンからなる難燃性樹脂組成物が記載されており、必要に応じて無機充填材を加えてよい旨も記載されている。

よって、文献1、3-6に基づいて、請求の範囲1-9に記載の発明をなすことは、当業者にとって困難なことではなく、格別な効果も認められない。



Translation

PATENT COOPERATION TRE

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

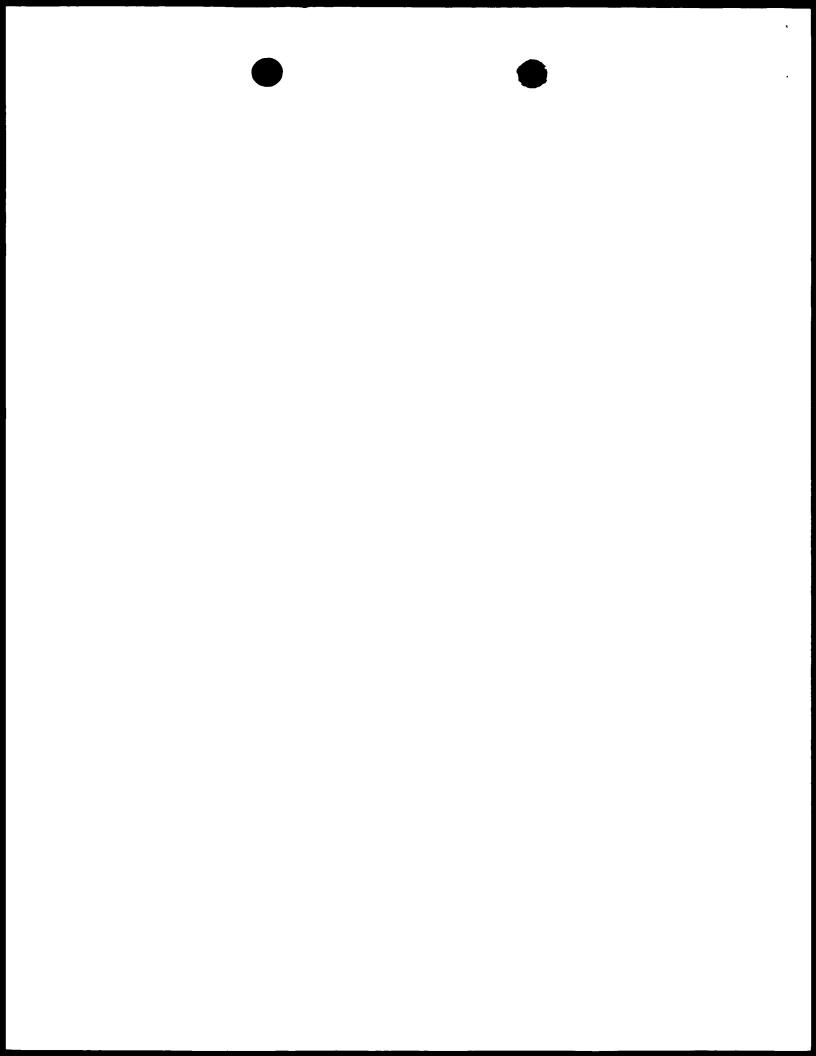
(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference CN00056	FOR FURTHER ACTION SeeNotificationofTransmittalofInternational Preliminary Examination Report (Form PCT IPEA 416)					
International application No. PCT/JP00/04749	International filing date (day mo	*	Priority date (day month year) 04 August 1999 (04.08.99)			
International Patent Classification (IPC) or a C08L 69/00, 67/02, C08K 3/00	national classification and IPC					
Applicant IDI	EMITSU PETROCHEMICA	AL CO., LT	D.			
This international preliminary examand is transmitted to the applicant a This REPORT consists of a total of	according to Article 36.		tional Preliminary Examining Authority			
been amended and are the bank Rule 70.16 and Section 607	asis for this report and/or sheets ec of the Administrative Instructions	ontaining recti	tion, claims and or drawings which have fications made before this Authority (see Γ).			
These annexes consist of a to	otal of sheets.					
3. This report contains indications relating to the following items:						
Basis of the report						
II Priority						
III Non-establishment	of opinion with regard to novelty.	, inventive step	and industrial applicability			
IV Lack of unity of inv	ention					
V Reasoned statement citations and explan	t under Article 35(2) with regard to nations supporting such statement	to novelty, invo	entive step or industrial applicability;			
VI Certain documents	cited					
VII Certain defects in the	he international application					
VIII Certain observation	is on the international application					
Date of submission of the demand	Date of	completion of	this report			
02 March 2001 (02.0	3.01)	08 Au	igust 2001 (08.08.2001)			
Name and mailing address of the IPEA JP	Authori	zed officer				
Facsimile No.	Telepho	one No.				



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

I.	Basis	of the re	port
1.	With	regard to	the elements of the international application:*
	\boxtimes	the inter	rnational application as originally filed
	一	the desc	cription:
		pages	, as originally filed
		pages	. filed with the demand
		pages	, filed with the letter of
		the clair	
		pages	as amonded trougther with any statement under Article 19
		pages pages	, as amended (together with any statement under Article 19
			. filed with the demand
		pages	, filed with the letter of
		the drav	
		pages	as originally filed
		pages	. filed with the demand
		pages	, filed with the letter of
	T t	he sequei	nce listing part of the description:
		pages	, as originally filed
		pages	, filed with the demand
		pages	, filed with the letter of
2.	the in	iternation e element the lang the lang the lang	to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which had application was filed, unless otherwise indicated under this item. Its were available or furnished to this Authority in the following language which is: guage of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)). In guage of publication of the international application (under Rule 48.3(b)). In guage of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/
3.	With prelir	minary ex	to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international samination was carried out on the basis of the sequence listing: ed in the international application in written form.
		filed to	gether with the international application in computer readable form.
		furnishe	ed subsequently to this Authority in written form.
		furnish	ed subsequently to this Authority in computer readable form.
			atement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the tional application as filed has been furnished.
			stement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has mished.
4.			the description, pagesthe claims. Nosthe drawings, sheets tigthe drawings.
5.			oort has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**
*	in thi	is report	theets which have been jurnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16).
	and ~	0.17,	
**	$A\eta_{k}r$	еріасете	int sheet containing such amendments must be reterred to under item 1 and annexed to this report



V. Reasoned statement under Artic citations and explanations suppo		ty, inventive step or industrial applicab	ility;
1. Statement			
Novelty (N)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	[-9	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-9	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Document 1: JP, 59-176345, A (Mitsubishi Gas Chemical Co., Inc.) 5 October 1984 (05.10.84)

Document 2: EP, 902060, A2 (NEC Corp.) 17 March 1999 (17.03.99)

Document 3: EP, 692522, A2 (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.) 17 January 1996 (17.01.96)

Document 4: JP. 11-199767, A (Teijin Chemical, Ltd.) 27 July 1999 (27.07.99)

Document 5: JP. 11-181268, A (Kaneka Corp.) 6 July 1999 (06.07.99)

Document 6: JP. 8-239565 (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.) 17 September 1996 (17.09.96)

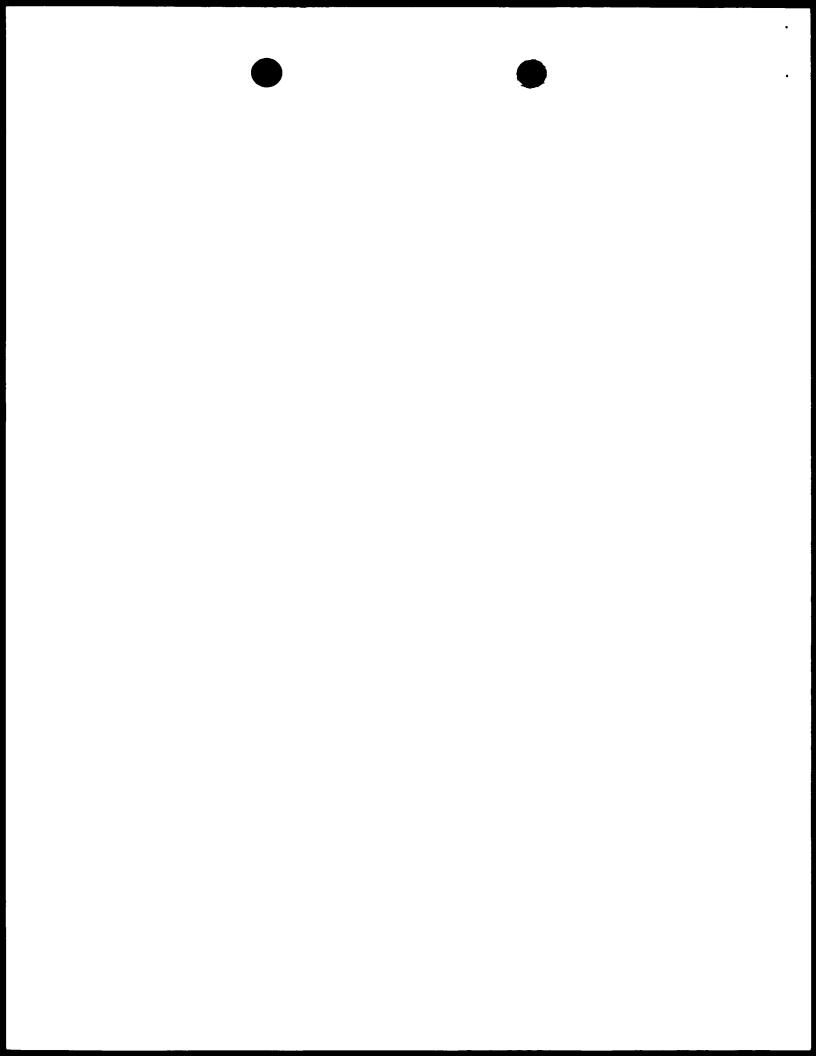
Based on the descriptions in documents 1, 2, and 4-6, the inventions set forth as Claims 1-9 do not appear to involve an inventive step.

Document 1 states that the inherent properties of an aromatic polycarbonate are manifested by adding a specific polymeric aromatic polyester to the aromatic polycarbonate, and chemical and steam resistance properties are improved. Document 2 describes a composition in which a silicone resin having alkoxy groups, powdered tale as a reinforcing agent and, if necessary, a drip inhibitor are added to an aromatic polycarbonate. Furthermore, it is extremely common for polytetrafluoroethylene that can be formed into fibrils to function as a drip inhibitor that is added to polycarbonate resin compositions. Moreover, as shown in documents 4-6, increasing flame and heat resistance by adding tale to a polycarbonate resin composition is widely known technology, and it is already known that the particle size of the tale will affect the external appearance.

As a result, based on the descriptions in documents 1, 2, and 4-6, this examination finds that persons skilled in the art will have no particular difficulty in creating the inventions set forth as Claims 1-9, and that they provide no outstanding advantage.

Based on the descriptions in documents 1 and 3-6, the inventions set forth in Claims 1-9 do not appear to involve an inventive step. Document 3 describes a flame-retardant resin composition comprising a polycarbonate-polyorganosiloxane copolymer, polycarbonate, and polytetrafluoroethylene with an average molecular weight of 500,000 or more that can be formed into fibrils, and it states that inorganic fillers may also be added as needed.

Therefore, based on the descriptions in documents 1 and 3-6, this examination finds that persons skilled in the art will have no particular difficulty in creating the inventions set forth as Claims 1-9, and that they provide no outstanding advantage.



(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



(43) 国際公開日 2001 年2 月15 日 (15.02.2001)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 01/10956 A1

(51) 国際特許分類7:

C08L 69/00. 67/02, C08K 3/00

(NODERA, Akio) [JP/JP]; 〒299-0107 千葉県市原市姉崎海岸1番地1 Chiba (JP).

299-0107 千葉県市原市姉崎海岸24番地4 出光興産株

DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

(74) 代理人: 弁理士 東平正道(TOHEI, Masamichi): 〒

(21) 国際出願番号:

PCT/JP00/04749

(22) 国際出願日:

2000年7月14日(14.07.2000)

(25) 国際出願の言語:

日本語

班

(26) 国際公開の言語:

日本語

(81) 指定国 (国内): US.

式会社内 Chiba (JP).

(30) 優先権データ:

特願平11/220919 1999 1

1999 年8 月4 日 (04.<u>08.</u>1999) JP

(84) 指定国 /広域/: ヨーロッパ特許 (AT. BE. CH. CY. DE.

(71) 出願人/米国を除く全ての指定国について): 出光右海 化学株式会社 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒130-0015 東京都墨田区横網一丁目6 番1号 Tokyo (JP).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

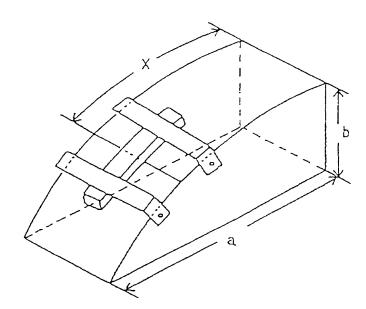
(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 野寺明夫

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: POLYCARBONATE RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: ポリカーボネート樹脂組成物



(57) Abstract: A polycarbonate resin composition in which flame retardancy has been imparted to a polycarbonate resin with halogen- and phosphorus-free compounds and which is excellent in impact resistance, rigidity, and chemical resistance while retaining excellent flame retardancy. The flame-retardant polycarbonate resin composition comprises 100 parts by weight of a resin composition consisting of (A) 1 to 99 wt.% polycarbonate and (B) 1 to 99 wt.% thermoplastic polyester. (C) 0.01 to 3 parts by weight of a polyfluoroolefin resin, and (D) 1 to 400 parts by weight of a polycarbonate/polyorganosiloxane copolymer and/or (E) 0.1 to 10 parts by weight of a functional silicone compound.



(57) 要約:

ポリカーボネート樹脂のノンハロゲン、ノンリン化合物による難燃化において、優れた難燃性を維持しながら、耐衝撃性、剛性及び耐薬品性に優れたポリカーボネート樹脂組成物を提供する。

(A) ポリカーボネート1~99重量%及び(B) 熱可塑性ポリエステル1~99重量%からなる樹脂組成物100重量部に対して、(C) ポリフルオロオレフィン樹脂0.01~3重量部、及び(D) ポリカーボネートーポリオルガノシロキサン共重合体1~400重量部及び/又は(E) 官能基含有シリコーン化合物0.1~10重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物である。

明細書

ポリカーボネート樹脂組成物

技術分野

本発明はポリカーボネート樹脂組成物に関し、さらに詳しくは、ハロゲンやリンを含まず、少量の添加剤の含有によって優れた難燃性を示すとともに、耐衝撃性、剛性、溶融流動性及び耐薬品性に優れたポリカーボネート樹脂組成物に関する。

背景技術

ポリカーボネート樹脂は、優れた耐衝撃特性、耐熱性、電気的特性などを有しており、OA(オフィスオートメーション)機器、情報・通信機器、家庭電化機器などの電気・電子機器分野、自動車分野、建築分野など様々な分野において幅広く利用されている。ポリカーボネート樹脂は、一般的に自己消火性樹脂ではあるが、OA機器、情報・通信機器、家庭電化機器などの電気・電子機器分野を中心として、高度の難燃性を要求される分野があり、各種難燃剤の添加により、その改善が図られている。

従来、ポリカーボネート樹脂の難燃性を向上させるため、ハロゲン化ビスフェノールA、ハロゲン化ポリカーボネートオリゴマーなどのハロゲン系難燃剤が難燃剤効率の点から酸化アンチモンなどの難燃助剤とともに用いられてきた。しかし、近年、ポリカーボネート樹脂製品の安全性や廃棄・焼却時の環境への影響の観点から、ハロゲンを含まない難燃剤による難燃化手法が市場より求められている。そこで、このような非ハロゲン系難燃剤として、有機リン系難燃剤、特に有機

リン酸エステル化合物を使用したポリカーボネート樹脂組成物が提案 されており、優れた難燃性が示されている。有機リン系難燃剤は可塑 剤としての作用もあるため、これを使用した多くの難燃化手法が提案 されている。

しかしながら、ポリカーボネート樹脂を有機リン酸エステル化合物で難燃化するためには、該化合物を比較的多量に配合する必要がある。また、ポリカーボネート樹脂は成形温度が高く、溶融粘度も高い。このため、成形品の薄肉化、大型化に対応するためには、成形温度を更に高くする必要がある。この場合、有機リン酸エステル化合物は難燃性の付与という利点はあるものの、成形加工時の金型腐食やガスの発生など、成形環境や成形品外観の面で必ずしも十分でない場合がある。また、成形品が加熱下に置かれたり、高温高湿度下に置かれた場合の衝撃強度の低下、変色の発生などの問題点が指摘されている。さらに、有機リン酸エステル化合物を配合したポリカーボネート樹脂組成物は熱安定性が不十分であることから、最近注目されているリサイクル適性に欠ける場合があるなどの問題点を残している。

一方、油やコピーインクが飛散する部品やグリース等を塗布する製品については、難燃性の他に耐薬品性も求められている。

このような市場要求に対して、ポリカーボネート樹脂にシリコーン 化合物を配合することによって、燃焼時に有害なガスを発生すること なく難燃性を付与する手法が提案されている。例えば、(1)特開平 10-139964号公報には特定の構造や分子量を有するシリコーン樹脂からなる難燃剤が開示されている。

また、(2)特開昭 5 1 - 4 5 1 6 0 号公報、特開平 1 - 3 1 8 0 6 9 号公報、特開平 6 - 3 0 6 2 6 5 号公報、特開平 8 - 1 2 8 6 8 号公報、特開平 8 - 2 9 5 7 9 6 号公報、特公平 3 - 4 8 9 4 7 号公

報などにおいてもシリコーン類を用いる難燃性ポリカーボネート樹脂組成物が開示されている。しかしながら、前者の(1)記載の手法では、難燃性のレベルはある程度優れた製品が得られるが、耐衝撃性が十分でない場合がある。後者の(2)記載の手法において、シリコーン類は難燃剤としての単独使用ではなく、耐ドリッピング性の改良を目的としての、例示化合物としての使用であったり、有機リン酸エステル化合物や周期律表第2族の金属塩などの他の難燃剤との併用を必須とするものである点において、前者とは異なるものである。しかしながら、(2)記載の難燃性ポリカーボネート樹脂においては、難燃剤含有に起因する成形性、物性の低下という別の問題点がある。

さらに、ポリカーボネート樹脂、ポリカーボネートーポリオルガノシロキサン共重合体含有樹脂、及びフィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンからなる難燃性ポリカーボネート樹脂組成物が知られている(特開平8-81620号公報)。この組成物はポリオルガノシロキサンの含有率が、少量のある特定範囲において優れた難燃性を示す。しかしながら、該組成物の難燃性は優れたものであるが、ポリカーボネート樹脂の特徴である耐衝撃性が低下する場合がある。

また、一般に耐薬品性を向上させるため、熱可塑性ポリエステルを配合することが知られている。例えば、特開平11-181265号公報には、ポリカーボネート樹脂に、ポリエステル系樹脂、パーフルオロアルカンスルホン酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩、フッ素樹脂及びシリコーンを配合したポリカーボネート樹脂組成物が開示されている。しかしながら、この樹脂組成物は、押出機等、高熱中に置かれた場合の滞留熱安定性が不十分である場合があり、リサイクル適性に欠ける場合がある。

本発明は、上記現状の下でなされたもので、ポリカーボネート樹脂

の非ハロゲン、非リン化合物による難燃化において、優れた難燃性を 維持しながら、耐衝撃性、剛性、溶融流動性及び耐薬品性に優れたポ リカーボネート樹脂組成物を提供することを目的とするものである。

発明の開示

本発明者は、鋭意研究を重ねた結果、ポリカーボネート樹脂に、熱 可塑性ポリエステル、ポリフルオロオレフィン樹脂、及びポリカーボ ネートーポリオルガノシロキサン共重合体及び/又は特定のシリコー ン化合物を配合することにより、上記本発明の目的を効果的に達成し 得ることを見出し本発明を完成させるに到った。

すなわち、本発明の要旨は下記の通りである。

- 1. (A) ポリカーボネート1~99重量%及び(B) 熱可塑性ポリエステル1~99重量%からなる樹脂組成物100重量部に対して、(C) ポリフルオロオレフィン樹脂0.01~3重量部、及び(D) ポリカーボネートーポリオルガノシロキサン共重合体1~400重量部及び/又は(E) 官能基含有シリコーン化合物0.1~10重量部を含有するポリカーボネート樹脂組成物であって、前記(D) 成分及び/又は(E) 成分由来のシリコーン含有量が、ポリカーボネート組成物の0.5~10重量%であるポリカーボネート樹脂組成物。
- 2. さらに、(F)無機充填剤1~50重量部を含有する上記1記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- 3. (E) 成分の官能基含有シリコーン化合物が、下記一般式(1)
 R¹a R²b S i O_{(4-a-b)/2} ・・・(1)

(式中、 R^1 は官能基、 R^2 は炭素数 $1 \sim 1$ 2 の炭化水素基、 a 及び b は、 $0 < a \le 3$ 、 $0 \le b < 3$ 、 $0 < a + b \le 3$ の関係を満たす数を示す。)

で表される基本構造を有する上記1又は2に記載のポリカーボネート 樹脂組成物。

- 4. (E) 成分の官能基含有シリコーン化合物において、官能基がアルコキシ基、ビニル基、水素基及びエポキシ基から選ばれる基である上記1~3のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- 5. (E)成分の官能基含有シリコーン化合物において、官能基がメトキシ基又はビニル基である上記1~4のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- 6. (C) 成分のポリフルオロオレフィン樹脂が、フィブリル形成能を有する平均分子量500,000以上のポリテトラフルオロエチレンである上記1~5のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。7. (A) 成分のポリカーボネートの粘度平均分子量が、15,000~20,000である上記1~6のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- 8. (F) 成分の無機充填剤が、平均粒径0. 2~20μmのタルクである上記2~7のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。9. 上記1~8のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物を使用してなる電気・電子機器のハウジングまたは部品。

図面の簡単な説明

第1図は、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の耐グリース性を 評価する際に用いる、試験片を固定するための治具の斜視図である。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明について詳細に説明する。

(A) ポリカーボネート

本発明のポリカーボネート樹脂組成物を構成する(A)成分であるポリカーボネート(PC)としては、特に制限はなく種々のものを挙げることができる。通常、二価フェノールとカーボネート前駆体との反応により製造される芳香族ポリカーボネートを用いることができる。すなわち、二価フェノールとカーボネート前駆体とを溶液法あるいは溶融法、すなわち、二価フェノールとホスゲンの反応、あるいは二価フェノールとジフェニルカーボネートなどとをエステル交換させる反応により製造されたものを使用することができる。

二価フェノールとしては、様々なものが挙げられるが、特に2,2 ービス(4ーヒドロキシフェニル)プロパン[ビスフェノールA]、 ビス(4ーヒドロキシフェニル)メタン、1,1ービス(4ーヒドロ キシフェニル)エタン、2,2ービス(4ーヒドロキシー3,5ージ メチルフェニル)プロパン、4,4'ージヒドロキシジフェニル、ビ ス(4ーヒドロキシフェニル)シクロアルカン系化合物、ビス(4ー ヒドロキシフェニル)オキシド、ビス(4ーヒドロキシフェニル)ス ルフィド、ビス(4ーヒドロキシフェニル)スルホン、ビス(4ーヒ ドロキシフェニル)スルホキシド、ビス(4ーヒドロキシフェニル) エーテル、ビス(4ーヒドロキシフェニル)ケトンなどが挙げられる。

特に好ましい二価フェノールとしては、ビス(ヒドロキシフェニル)アルカン系化合物、特にビスフェノールAを主原料としたものである。この他、二価フェノールとしては、ハイドロキノン、レゾルシン、カテコール等が挙げられる。これらの二価フェノールは、それぞれ単独で用いてもよいし、2種以上を混合して用いてもよい。

また、カーボネート前駆体としては、カルボニルハライド、カルボニルエステル、またはハロホルメートなどを挙げることができる。 具体的には、例えば、ホスゲン、二価フェノールのジハロホーメート、

ジフェニルカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネートなどが挙げられる。

(A) 成分のポリカーボネート樹脂は、分岐構造を有していてもよい。分岐剤としては、1,1,1ートリス(4ーヒドロキシフェニル)エタン、α,α',α"ートリス(4ービドロキシフェニル)-1,3,5ートリイソプロピルベンゼン、フロログリシン、トリメリット酸、イサチンビス(αークレゾール)などが挙げられる。また、ポリカーボネート樹脂の分子量を調節するためには、フェノール、pーtーブチルフェノール、p-tコチルフェノール、p-tコチルフェノール、p-tコチルフェノール、p-tコチルフェノール、p-tコールなどが用いられる。

また、本発明に用いるポリカーボネート樹脂としては、テレフタル酸などの2官能性カルボン酸、またはそのエステル形成誘導体などのエステル前駆体の存在下でポリカーボネートの重合を行うことによって得られるポリエステルーポリカーボネート樹脂などの共重合体を用いることができる。さらには、種々のポリカーボネート樹脂の混合物を用いることもできる。

本発明に使用されるポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量は、通常 $10,000\sim50,000$ 、好ましくは $13,000\sim35,0$ 00、さらに好ましくは $15,000\sim20,000$ である。この粘度平均分子量(Mv)は、ウベローデ型粘度計を用いて、20 Cにおける塩化メチレン溶液の粘度を測定し、これより極限粘度 $[\eta]$ を求め、次式にて算出するものである。

 $[\eta] = 1.23 \times 10^{-5} \text{M y}^{0.83}$

(B)熱可塑性ポリエステル

本発明の(B)成分である熱可塑性ポリエステルとしては、種々の ものを使用することができる。特に、二官能性カルボン酸成分とアル キレングリコール成分を重縮合して得られるポリエステル樹脂が好適である。ここで、二官能性カルボン酸成分及びアルキレングリコール成分として次のものを挙げることができる。

二官能性カルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸等の芳香族ジカルボン酸を挙げることができる。これらの中ではテレフタル酸が好ましく、本発明の効果を損なわない範囲内で他の二官能性カルボン酸を併用することができる。それらは、例えば、シュウ酸、マロン酸、アジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、デカンジカルボン酸等の脂肪族カルボン酸である。これら、他のジカルボン酸成分の割合は全ジカルボン酸に対し一般に20モル%以内が好ましい。

次に、アルキレングリコール成分としては、特に制限はないが、具体的には、エチレングリコール、プロピレン-1、2-グリコール、プロピレン-1、3-グリコール、ブチレン-1、4-グリコール、ブチレン-2、3-グリコール、ヘキサン-1、6-ジオール、オクタン-1、8-ジオール、ネオペンチルグリコール、デカン-1、10-ジオールのような炭素数2~10を有する脂肪族ジオール等を用いることができる。中でも、エチレングリコール、ブチレングリコールが好適である。

(B) 成分の熱可塑性ポリエステルは、チタン, ゲルマニウム, アンチモン等を含有する重縮合触媒の存在下又は不存在下において通常の方法により製造することができる。例えば、ポリエチレンテレフタレートは、通常、テレフタル酸とエチレングリコールとをエステル化反応せしめるか、またはジメチルテレフタレートのような低級アルキルエステルとエチレングリコールとをエステル交換せしめて、テレフタル酸のグリコールエステル及び/又はその低重合体を製造する第1

段階の反応と、該グリコールエステル及び/又はその低重合体をさら に重合せしめて重合度の高いポリマーとする第2段階の反応により製 造される。

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、(A)成分のポリカーボネートに(B)成分の熱可塑性ポリエステルを配合することにより、樹脂組成物の溶融流動性と耐薬品性を向上させたものである。ここで、(A)成分と(B)成分の配合比は、(A)ポリカーボネート1~99重量%、好ましくは50~90重量%、(B)熱可塑性ポリエステル1~99重量%、好ましくは10~50重量%である。

(C) ポリフルオロオレフィン樹脂

本発明のポリカーボネート樹脂組成物においては、ポリフルオロオレフィン樹脂が、燃焼時の溶融滴下防止を目的に使用される。ここでポリフルオロオレフィン樹脂としては、通常フルオロエチレン構造を含む重合体、共重合体である。たとえば、ジフルオロエチレン重合体、テトラフルオロエチレン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体、テトラフルオロエチレンとフッ素を含まないエチレン系モノマーとの共重合体等を挙げることがである。好ましくは、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)であり、その平均分子量は、500,000以上であることが好ましく、特に好ましくは500,000~10,000である。ポリテトラフルオロエチレンとしては、現在知られているすべての種類のものを用いることができる。

なお、ポリテトラフルオロエチレンのうち、フィブリル形成能を有するものを用いると、さらに高い溶融滴下防止性を付与することができる。フィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレン(PTFE)には特に制限はないが、例えば、ASTM規格において、タイ

プ3に分類されるものが挙げられる。その具体例としては、テフロン 6-J(三井・デュポンフロロケミカル社製)、ポリフロンD-1、ポリフロンF-103、ポリフロンF-201(ダイキン工業株式会社製)、CD076(旭硝子フロロポリマーズ社製)等を挙げることができる。

また、上記タイプ3に分類されるもの以外では、例えばアルゴフロンF5(モンテフルオス社製)、ポリフロンMPA、ポリフロンFA-100(ダイキン工業社製)等を挙げることができる。これらのポリテトラフルオロエチレン(PTFE)は、単独で用いてもよいし、二種以上を組み合わせてもよい。上記のようなフィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレン(PTFE)は、例えばテトラフルオロエチレンを水性溶媒中で、ナトリウム、カリウム、あるいはアンモニウムパーオキシジスルフィドの存在下で、1~100psiの圧力下、温度0~200℃、好ましくは20~100℃で重合させることによって得られる。

ここで、(C)成分の含有量は、(A)成分及び(B)成分からなる樹脂組成物100重量部に対して、0.01~3重量部、好ましくは、0.05~1重量部あるいは0.05~2重量部である。この量が少なすぎると、目的とする難燃性における溶融滴下防止性が十分でなく、多すぎると、これに見合った効果の向上はなく、耐衝撃性や成形品外観に悪影響を与える場合がある。したがって、それぞれの成形品に要求される難燃性の程度、たとえば、UL94のV-0、V-1、V-2などにより他の含有成分の使用量などを考慮して適宜決定することができる。

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、上記(A)~(C)成分に加え、(D)及び/又は(E)成分を含有する。

(D) ポリカーボネートーポリオルガノシロキサン共重合体

本発明の(D)成分のポリカーボネートーポリオルガノシロキサン共重合体(以下PCーポリオルガノシロキサン共重合体と略記することがある。)は、ポリカーボネート部とポリオルガノシロキサン部からなる重合体である。PCーポリオルガノシロキサン共重合体は、例えば、ポリカーボネートオリゴマーと、末端に反応性基を有するポリオルガノシロキサン(例えば、ポリジメチルシロキサン、ポリジエチレンシロキサン、ポリメチルフェニルシロキサン、ポリジフェニルシロキサンなど)とを、塩化メチレンなどの溶媒に溶解させ、ビスフェノールAの水酸化ナトリウム水溶液を加え、トリエチルアミンなどの触媒を用い、界面重縮合することにより製造することができる。

PCーポリオルガノシロキサン共重合体のポリカーボネート部の重合度としては、3~100程度のものが好ましく用いられる。一方、ポリオルガノシロキサン部の重合度としては、2~500程度のものが好ましく用いられる。また、PCーポリオルガノシロキサン共重合体中のポリオルガノシロキサンの含有量は、通常0.5~30重量%、好ましくは1~20重量%の範囲である。(D)成分のPCーポリオルガノシロキサン共重合体の粘度平均分子量は通常5,000~100,000、好ましくは10,000~30,000である。なお、この粘度平均分子量は前記のポリカーボネートの場合と同様の方法で求めることができる。

(D)成分は、(A)成分及び(B)成分からなる樹脂組成物100重量部に対して、1~400重量部、好ましくは5~330重量部含有することができる。その量が少なすぎると、(E)成分不含有系の場合、難燃性の向上効果がでず、多すぎると、添加量に見合った効果がでない。

上記において、ポリカーボネート樹脂組成物が、(A), (B), (C) および (D) 成分を含有する組成物である場合には、(D) 成分の含有量は好適には、1~400重量部であり、更に好適には5~330重量部である。また、(A), (B), (C), (D) および (E) 成分を含有する組成物である場合においても、(D) 成分の含有量は好適には、1~400重量部であり、更に好適には5~330重量部である

(E) 官能基含有シリコーン化合物

本発明の(E)成分である官能基含有シリコーン化合物は官能基を 有する(ポリ)オルガノシロキサン類である。そして、下記一般式(1)

$$R^{1}aR^{2}bS i O_{(4-a-b)/2}$$
 (1)

 $[R^1$ は官能基、 R^2 は炭素数 $1 \sim 1 \ 2 \$ の炭化水素基、 $0 < a \le 3 \$ 、 $0 \le b < 3 \$ 、 $0 < a + b \le 3$]

で表される基本構造を有する重合体、共重合体が好適に使用される。

(E) 成分として、複数の異なる官能基を有するシリコーン化合物 を用いたり、異なる官能基を有するシリコーン化合物を2種以上併用 することもできる。

この官能基含有シリコーン化合物は、上記の基本構造において、官能基 (R^1) / 炭化水素基 (R^2) が、通常 $0.1 \sim 3$ 、好ましくは $0.3 \sim 2$ 程度のものである。

(E)成分の官能基含有シリコーン化合物は液状物、ハウダーなどであるが、溶融混練において分散性の良好なものが好ましい。好ましいものとしては、例えば、室温での粘度が10~500,000cst程度の液状のものを例示できる。本発明のポリカーボネート樹脂組成物にあっては、液状の(E)成分を用いた場合においても、該成分が組成物中に均一に分散するとともに、成形時や成形品の表面にブリードすることが少ないという特徴がある。

この官能基含有シリコーン化合物は、(A)成分及び(B)成分からなる樹脂組成物100重量部に対して、0.1~10重量部、好ましくは0.2~5重量部、あるいは2~5重量部含有することができる。その量が0.1重量部未満の場合、(D)成分を含有しない組成物においては難燃性の向上効果がでず、10重量部を超える量を配合しても、量に見合った効果がでない。

上記において、ポリカーボネート樹脂組成物が、(A),(B),(C)および(E)成分を含む組成物である場合には、(E)成分の含有量は好適には、0.2~5重量部であり、更に好適には0.5~5重量部である。また、(A),(B),(C),(D)および(E)成分を含む組成物である場合においても、(E)成分の含有量は好適には、0.2~5重量部であり、更に好適には0.5~5重量部である。

なお、本発明においては、(D)及び/又は(E)成分由来のシリコーン含有量がポリカーボネート樹脂組成物の0.5~10重量%に

なるように調整するのが好ましい。さらに好ましくは0.7~5重量%である。0.5重量%未満であると、難燃性の向上効果が小さい場合があり、10重量%を超えると、耐衝撃性や耐熱性が低下してしまう場合がある。ここで、(D)及び/又は(E)成分由来のシリコーン含有量とは、(D)及び/又は(E)成分中のポリオルガノシロキサンの含有量である。

(F) 無機充填剤

本発明においては、上記(A)~(C)成分、及び(D)及び/又は(E)成分を含有させることによって、その目的を達成することができる。そして、成形品の剛性と難燃性をさらに向上させることを目的として、(F)無機充填剤を存在させることができる。

ここで、無機充填剤としては、タルク、マイカ、カオリン、珪藻土、炭酸カルシウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、ガラス繊維、炭素繊維、チタン酸カリウム繊維などをあげることができる。なかでも、板状充填剤であるタルク、マイカなどや、繊維状の充填剤が好ましい。タルクとしては、マグネシウムの含水ケイ酸塩であり、一般に市販されているものを好適に用いることができる。また、タルクなどの板状無機充填剤の平均粒径は0.1~50μmが好ましく、更に好ましくは、0.2~20μmである。これら無機充填剤、特にタルクを含有させることにより、剛性が更に向上するのに加えて、官能基含有シリコーン化合物の配合量を減少させることができる場合がある。

ここで、(F)成分の無機充填剤の含有量は、(A)及び(B)成分からなる樹脂組成物100重量部に対して、1~50重量部、好ましくは、2~30重量部である。その量が少なすぎると、目的とする剛性、難燃性の更なる改良効果が十分でない場合があり、多すぎると、耐衝撃性、溶融流動性が低下する場合がある。この含有量は、成形品

の厚みや樹脂の流動特性など、成形品の要求性状と要求される成形性 を考慮して適宜決定することができる。

本発明のポリカーボネート樹脂組成物においては、上記の成分に加え、更に耐衝撃性を向上させるために、エラストマーを添加することができる。エラストマーとしては、好適には、コア・シェルタイプのエラストマーを挙げることができる。また、添加量は、好適には、(A)成分と(B)成分からなる樹脂組成物100重量部に対して、0.5~10重量部である。

本発明のポリカーボネート樹脂組成物においては、上記の成分とともに、熱可塑性樹脂に常用される添加剤成分を必要により含有させることができる。このような添加剤成分としては、例えば、フェノール系、リン系、イオウ系酸化防止剤、帯電防止剤、ポリアミドポリエーテルブロック共重合体等の永久帯電防止性能付与剤、ベンゾトリアゾール系やベンゾフェノン系の紫外線吸収剤、ヒンダードアミン系の光安定剤(耐候剤)、可塑剤、抗菌剤、相溶化剤、着色剤(染料、顔料)等が挙げられる。これら添加剤成分の配合量は、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の特性が維持される範囲であれば特に制限はない。

次に、本発明のポリカーボネート樹脂組成物を製造する方法について説明する。本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、前記の各成分(A)~(E)を上記割合で、さらに必要に応じて、(F)成分などの各種任意成分を適当な割合で配合し、溶融混練することにより製造することができる。このときの配合および溶融混練は、通常用いられている機器、例えばリボンブレンダー、ドラムタンブラーなどで予備混合して、ヘンシェルミキサー、バンバリーミキサー、単軸スクリュー押出機、二軸スクリュー押出機、多軸スクリュー押出機、コニーダ等を用いるという方法で行うことができる。溶融混練の際の加熱温度

は、通常240~300℃の範囲で適宜選択される。この溶融混練としては、押出成形機、特にベント式の押出成形機を用いる形式が好ましい。なお、ポリカーボネート樹脂以外の含有成分は、マスターバッチとして添加することもできる。

本発明のポリカーボネート樹脂組成物においては、溶融混練後、造粒して得られたペレットを原料として、射出成形法、射出圧縮成形法、押出成形法、ブロー成形法、プレス成形法、真空成形法、発泡成形法などの成形法を採用して各種成形品を製造することができる。本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、射出成形法、射出圧縮成形法による射出成形品の製造に特に好適に用いることができる。ここで、射出成形方法を用いる場合、成形品外観の改良、特にヒケ防止のため、あるいは軽量化のために、ガス注入射出成形法を採用することができる。

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、高度の難燃特性であるUL94のV-0 (1.5 mm)又はV-1 (1.5 mm)の規格を満足することがでる。このため、本発明のポリカーボネート樹脂組成物を使用して得られた成形品は、複写機、ファックス、テレビ、ラジオ、テープレコーダー、ビデオデッキ、パソコン、プリンター、電話機、情報端末機、冷蔵庫、電子レンジなどの電気・電子機器のハウジウングや部品、さらには、自動車部品など他の分野に好適に用いることができる。

以下、本発明について実施例および比較例を示してより具体的に説明するが、本発明はこれらにより何ら制限されるものではない。 実施例1~5及び比較例1~4

第1表に示す割合で各成分を配合(全て重量部で示す。)し、ベント式 二軸押出成形機(機種名:TEM35、東芝機械社製)に供給し、

280℃で溶融混練し、ペレット化した。なお、すべての実施例および比較例において、酸化防止剤としてイルガノックス1076(チバ・スペシヤルティ・ケミカルズ社製、オクタデシルー3ー(3,5ーtーブチルー4ーヒドロキシフェニル)プロピオネート)0.2重量部およびアデカスタブC(旭電化工業社製、ジフェニルー(2ーエチルヘキシル)ホスファイト)0.1重量部をそれぞれ配合した。得られたペレットを、120℃で12時間乾燥した後、成形温度270℃、金型温度80℃で射出成形して試験片を製造した。そして、この試験片を用いて樹脂組成物の性能を各種試験によって評価した。その結果を第1表に示す。

なお、用いた成形材料および性能評価方法を次に示す。

(A) ポリカーボネート

PC-1: ビスフェノール A ポリカーボネート樹脂、タフロン A 1 9 0 0 (出光石油化学社製)、M I = 2 0 g / 1 0 分 (3 0 0 $^{\circ}$ C、1. 2 k g 荷重)、粘度平均分子量= 1 9, 0 0 0

(B) 熱可塑性ポリエステル

PET:ポリエチレンテレフタレート、ダイヤナイトMA523 (三菱レイヨン製社製)

PBT:ポリブチレンテレフタレート、タフペットN1000 (三菱レイヨン)

(C) ポリフルオロオレフィン樹脂

PTFE: CD076 (旭硝子フロロポリマーズ社製)、平均分子量300万

(D) ポリカーボネートーポリオルガノシロキサン共重合体 PC-PDMS: ビスフェノールAポリカーボネートーポリジメチル シロキサン (PDMS) 共重合体、MI=45g/10分(300℃, 1. 2 k g 荷重)、PDMS鎖長 (n) = 30、PDMS含有量= 4
 重量%、粘度平均分子量= 20,000 [特開平8-81260号公報の製造例3-1 (A₁)により製造されたもの]

(E) 官能基含有シリコーン化合物

シリコーン -1: ビニル基メトキシ基含有メチルフェニルシリコーン、 KR219 (信越化学工業社製)、粘度=18cst (23 $^{\circ}$ C)、前記一般式 (1) における、 $R^1/R^2=0$. 67、 a=1、 b=1. 5

シリコーン -2: メトキシ基含有ジメチルシリコーン、KC-89(信越化学工業社製)、粘度 =20 c s t (23%)、前記一般式 (1)における、 $R^1/R^2=1.0$ 、a=1、b=1シリコーン -3: ジメチルシリコーン (比較)、SH200 (東レダ

(F) 無機充填剤

タルク: FFR (浅田製粉社製)、平均粒径=0.7μm

ウコーニング社製)、粘度=350cst (23℃)

(G)その他成分

エラストマー:コア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体、メタブレンS2001 (三菱レイヨン社製)

〔性能評価方法〕

(1)溶融流動性

MI (メルトインデックス): JIS K7210に準拠。300 ℃、1.2 k g 荷重

(2) IZOD (アイゾット衝撃強度)

ASTM D-256に準拠、23℃ (肉厚1/8インチ)、単位: k J/m²

(3)曲げ弾性率

ASTM D-790に準拠(試験条件等:23℃、4mm)、単位:MPa

(4) 耐グリース性

耐薬品性評価法 (1/4楕円のよる限界歪み) に準拠した。

図1 (斜視図) に示す、1/4 楕円の面に試験片(厚み=3 mm) を固定し、試験片にアルバニアグリース(昭和シェル石油社製)を塗布し、48時間保持した。クラックが発生する最小長さ(X)を読み取り、下記の式より限界歪み(%)を求めた。

限界歪み (%) =
$$\frac{b}{2 a^2}$$
 [1 - ($\frac{b^2}{a^2}$) X^2] $-3/2$ ・ t

上記において t は試験片の厚みを表す。

(5) 難燃性

UL94燃焼試験に準拠(試験片厚み:1.5 mm)

(6) 滞留熱安定性(300℃/20分)

前記ペレットを前記と同様にして射出成形し、角板を成形した。その際、射出成形機 [東芝機械社製:100EN] のシリンダー温度をフラット (即ち、シリンダー内の温度を同一温度に設定) とし、外形寸法が80mm×80mmで、肉厚が3.2mmの角板を成形した。この成形条件で、通常成形を10ショット行い、ついで計量終了後、溶融樹脂をシリンダー内に20分間放置した。その後、1ショット目の成形品について、その外観を目視にて評価した。

第1表において、「問題なし」とは、通常ショット品と比較した場合に目視では色調の違いが認められず、また、シルバーの発生も認められない状態をいう。また、「シルバー」とは、成形時にガスが発生

して、成形品の表面にスジが形成された状態をいう。

第1表-1

			実施例1	比較例1	比較例2
	(A)	PC-1	85	85	100
配	(B)	PET	15	15	
		PBT	_	_	
合	(C)	PTFE	0. 5	0. 5	0. 5
	(D)	PC-PDMS		_	
割	(E)	シリコーン 1	4	_	4
		シリコーン2			
合		シリコーン3			
	(F)	タルク	<u> </u>		
	(G)	エラストマー			
	全シリ	/コーン量[重量%]	4. 0	0	4.0
	(1)溶	帮融流動性:MI[g╱10分]	35	33	22
評	(2)12	ZOD衝擊強度 [kJ/m²]	45	35	15
	(3)曲	Iゲ弾性率 [MPa]	2300	2300	2400
価	(4)面	プリース性(限界応力)	1.6≦	1.6≦	0. 5
	(5)難	É燃性 (1.5mm)	V-0	V-2 out	V-0
	(6)滞	部熱安定性(外観)	問題なし	問題なし	問題なし

第1表-2

			比較例3	比較例4	実施例2
	(A)	PC-1	85	85	85
配	(B)	PET	15	15	15
		PBT	_	_	<u> </u>
合	(C)	PTFE		0. 5	0. 7
	(D)	PC-PDMS	_	_	33
割	(E)	シリコーン 1	4		2. 7
		シリコーン2		_	
合		シリコーン3		4	
	(F)	タルク	_		
	(G)	エラストマー	_		
	全シ	/コーン量[重量%]	4. 0	4. O	3. 0
	(1)溶	『融流動性: MI[g╱10分]	35	35	30
評	(2)12	ZOD衝擊強度 [kJ/m²]	45	40	55_
	(3)曲	lげ弾性率 [MPa]	2300	2300	2300
価	(4)酮	ブリース性(限界応力)	1.6≦	1.6≦	1. 2
	(5)對	焦燃性 (1.5mm)	V-0	V-2 out	V-0
	(6)滞	留熱安定性(外観)	問題なし	問題なし	問題なし

			実施例3	実施例4	実施例5	比較例5
	(A)	PC-1	60	60	60	85
配	(B)	PET	40	40		15
		PBT	_		40	_
合	(C)	PTFE	2. 0	1. 2	0. 6	0. 5
	(D)	PC-PDMS	300	300	100	
割	(E)	シリコーン 1				
		シリコーン2			4	
合		シリコーン3				0. 3
	(F)	タルク		40	20	
	(G)	エラストマー	_	_	10	
	ハ・ーフ	フルオロプタンスルホン酸カリウム			_	0. 2
	全シ	Jコーン量[重量 %]	3. 0	2. 7	3. 5	0. 3
	(1)落	於融流動性: MI[g/10分]	28	26	38	40
評	(2)12	ZOD衝擊強度 [kJ/m²]	60	15	40	15
	(3)曲	Hげ弾性率 [MPa]	2400	3700	3400	2500
価	(4)香	オグリース性(限界応力)	1. 0	1. 4	1.6≦	1.6≦
	(5)對	焦燃性(1.5mm)	V-1	V-0	V-0	V-2
	(6)滞	常留熱安定性(外観)	問題なし	問題なし	問題なし	シルバー

第1表-3

第1表から下記のこと示される。

- (i) (D) 成分と(E) 成分がない比較例1においては、難燃性に劣る。
- (ii)(B)成分がない比較例2においては、溶融流動性及び耐グリース性に劣る。
- (iii)(C)成分がない比較例3においては、難燃性に劣る。
- (iv) シリコーン化合物として、一般のシリコーン化合物を使用した 比較例4においては、難燃性に劣る。
- (v) パーフルオロブタンスルホン酸カリウムを添加した比較例 5 においては、衝撃強度が低下し、滞留熱安定性も劣る。

産業上の利用可能性

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、ハロゲンやリンを含まず、かつ少量の添加剤の含有ですぐれた難燃特性が得られ、また耐衝撃性、剛性、溶融流動性及び耐薬品性に優れる。このため、本発明のポリカーボネート樹脂組成物を用いた成形品は、OA機器、情報機器、家庭電化機器などの電気・電子機器のハウジング又は部品、さらには自動車部品などに好適に使用することができる。

請求の範囲

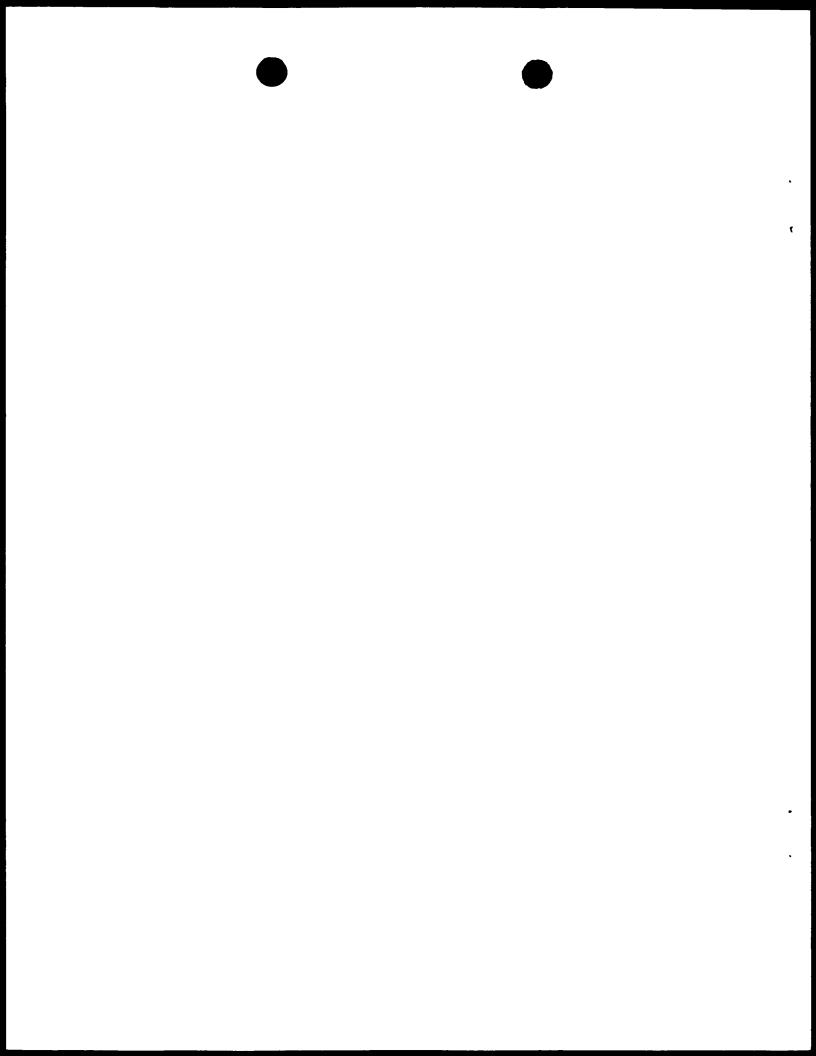
- 1. (A) ポリカーボネート1~99重量%及び(B) 熱可塑性ポリエステル1~99重量%からなる樹脂組成物100重量部に対して、(C) ポリフルオロオレフィン樹脂0. 01~3重量部、及び(D) ポリカーボネートーポリオルガノシロキサン共重合体1~400重量部及び/又は(E) 官能基含有シリコーン化合物0. 1~10重量部を含有するポリカーボネート樹脂組成物であって、(D) 成分及び/又は(E) 成分由来のシリコーン含有量が、ポリカーボネート組成物の0. 5~10重量%であるポリカーボネート樹脂組成物。
- 2. さらに、(F)無機充填剤1~50重量部を含有する請求の範囲 第1項記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- 3. (E)成分の官能基含有シリコーン化合物が、下記一般式(1)
 R¹a R²b S i O_{(4-a-b)/2} ・・・(1)

(式中、 R^1 は官能基、 R^2 は炭素数 $1 \sim 1$ 2の炭化水素基、 a 及び b は、 $0 < a \le 3$ 、 $0 \le b < 3$ 、 $0 < a + b \le 3$ の関係を満たす数を示す。)

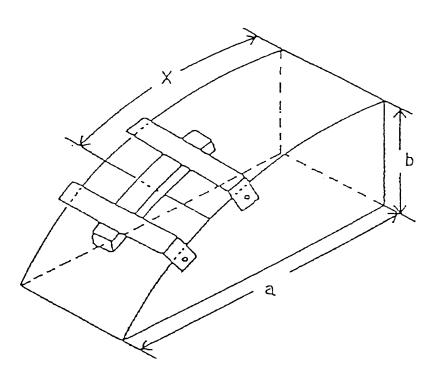
で表される基本構造を有する請求の範囲第1項又は第2項に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

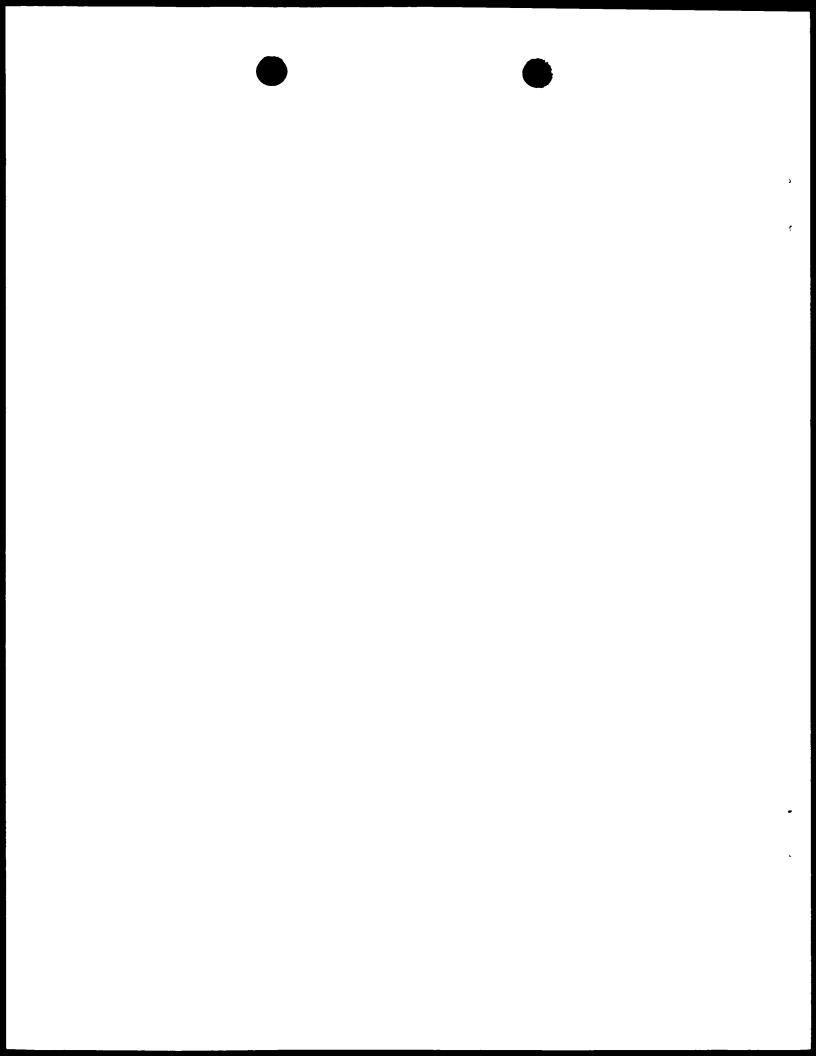
- 4. (E) 成分の官能基含有シリコーン化合物において、官能基がアルコキシ基、ビニル基、水素基及びエポキシ基から選ばれる基である請求の範囲第1項~第3項のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- 5. (E) 成分の官能基含有シリコーン化合物において、官能基がメトキシ基又はビニル基である請求の範囲第1項~第4項のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。

- 6. (C) 成分のポリフルオロオレフィン樹脂が、フィブリル形成能を有する平均分子量500,000以上のポリテトラフルオロエチレンである請求の範囲第1項~第5項のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- 7. (A) 成分のポリカーボネートの粘度平均分子量が、15,000~20,000である請求の範囲第1項~第6項のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- 8. (F) 成分の無機充填剤が、平均粒径 0. 2~20 μ m のタルクである請求の範囲第 2 項~第 7 項のいずれかに記載のポリカーボネート樹脂組成物。
- 9. 請求の範囲第1項~第8項のいずれかに記載のポリカーボネート 樹脂組成物を使用してなる電気・電子機器のハウジングまたは部品。



第1図





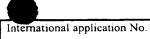


International application No.

PCT/JP00/04749

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ C08L69/00, C08L67/02, C08K3/00				
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
				
	ocumentation searched (classification system followed Cl ⁷ C08L67/00-C08L69/00, C08K3			
	ion searched other than minimum documentation to the			
Electronic de WPI/	ata base consulted during the international search (name	e of data base and, where practicable, sear	ch terms used)	
C. DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category*	Citation of document, with indication, where ap	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	
Y1	JP, 59-176345, A (Mitsubishi Gas 0 05 October, 1984 (05.10.84), Claims; page 1, lower right colum left column, line 12 (Family:	n, line 16; page 3, upper	1-9	
Y2	EP, 902060, A2 (NEC CORPORATION), 17 March, 1999 (17.03.99), Claims, Column 33 & JP, 10-139964, A		1-9	
¥2	EP, 692522, A2 (IDEMITSU PETROC 17 January, 1996 (17.01.96), Claims,page 2, line 12; page 2, & JP, 8-81620, A & US, 6000	line 22	1-9	
¥2	JP, 11-199767, A (Teijin Chem. 27 July, 1999 (27.07.99), Claims; Column 31 (Family: no		2-9	
¥2	JP, 11-181268, A (Kanegafuchi C 06 July, 1999 (06.07.99), Claims; Columns 38, 40 (Famil	Chem. Ind. Co., Ltd.), y: none)	2-9	
Further	r documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 10 October, 2000 (10.10.00) Date of mailing of the international search report 17 October, 2000 (17.10.00)				
	nailing address of the ISA/ nnese Patent Office	Authorized officer		
Facsimile No.		Telephone No.		





International application No.
PCT/JP00/04749

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
¥2	JP, 8-239565, A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 17 September, 1996 (17.09.96), Claims; Columns 41, 42 (Family: none)	2-9		
	SA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)			

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/04749

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. C17 C08L69, 00, C08L67, 02, C08K3/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. $C1^7 C08L67$, 00-C08L69, 00, C08K3/00-13/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

WP I/L

C. 関連する	ると認められる文献	
引用文献の		関連する
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号
Y 1	JP, 59-176345, A (三菱瓦斯化学株式会社) 5. 10 月. 1984 (05. 10. 84), 特許請求の範囲,第1頁右下 欄第16行目,第3頁左上欄第12行目, (ファミリーなし)	1 — 9
Y 2	EP, 902060, A2 (NEC CORPORATION) 17.3月.1999 (17.03.99), Claims, 第33欄&JP, 10-139964, A	1 – 9
Y 2	EP, 692522, A2 (IDEMITSU PETROCHE	1 – 9

x C欄の続きにも文献が列挙されている。

□ パテントファミリーに関する別紙を参照。

- * 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 10.10.00 国際調査報告の発送日 17.10.00 国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 連科 壮一 野便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 電話番号 03-3581-1101 内線 3457

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/04749

C(続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	MICAL CO., LTD.) 17. 1月. 1996 (17. 0 1. 96), Claims, 第2頁第12行目, 第2頁第22行目 & JP, 8-81620, A & US, 60001929, A	
Y 2	JP, 11-199767, A (帝人化成株式会社) 27.7月. 1999(27.07.99), 特許請求の範囲, 第31欄, (ファミリーなし)	2-9
Y 2	JP, 11-181268, A (鰐淵化学工業株式会社) 6.7 月.1999(06.07.99), 特許請求の範囲, 第38欄, 第40欄, (ファミリーなし)	2-9
Y 2	JP, 8-239565, A (出光石油化学株式会社), 17.9月.1996(17.09.96), 特許請求の範囲, 第41欄, 第42欄, (ファミリーなし)	2-9